

ANALISIS STRUKTUR DAN KOMPOSISI FASA SERBUK Mg_2TiO_4 Sakinatus Zahro¹, Frida U. Ermawati²^{1,2}Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri SurabayaEmail: ¹sakinatuszahro@mhs.unesa.ac.id; ¹sakinazahro@gmail.com²frida.ermawati@unesa.ac.id

Abstrak

Telah dilakukan sintesis serbuk Mg_2TiO_4 (disingkat MTO) dengan metode pencampuran larutan, dengan bahan awal berupa serbuk logam Mg dan Ti (*Merck*) dan pelarut HCl. Serbuk MTO dikalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam. Hasil uji XRD menunjukkan bahwa serbuk MTO 1000 berstruktur MgTiO_3 (No. PDF 06-0494), MgO (No. PDF 45-0946), dan Mg_2TiO_4 (No. PDF 25-1157). Hasil tersebut didukung oleh data FTIR. Fasa Mg_2TiO_4 terbentuk dengan persentase molar sebesar $(5,75 \pm 0,12)\%$. Data distribusi ukuran partikel dari sampel uji juga disertakan.

Kata Kunci: metode pencampuran larutan, MTO, Mg_2TiO_4 .

Abstract

Synthesis of Mg_2TiO_4 (abbreviated MTO) has been carried out by liquid mixing method from Mg and Ti (*Merck*) metal powders as the starting materials and HCl as a solvent. MTO powder was calcined at 1000 °C for 4h. The XRD results showed that MTO 1000 has the structure of MgTiO_3 , MgO and Mg_2TiO_4 . The Mg_2TiO_4 phase was formed very minor with a molar percentage of $(5.75 \pm 0.12) \%$. This result is supported by FTIR data. The particle size distribution data from the test sample is also included.

Keywords: liquid mixing method, MTO, Mg_2TiO_4 .

PENDAHULUAN

Bahan dielektrik keramik umumnya dipergunakan sebagai komponen elektronika pada sistem-sistem komunikasi pada daerah frekuensi gelombang mikro, seperti filter resonator, antena, radar dan sistem pemosisi global (SPG). Dielektrik keramik Mg_2TiO_4 (*qandilite*) adalah salah satu fasa dari magnesium titanate yang berstruktur *inverse spinel*, memiliki *space grup* Fd-3m (Wechsler and Von Dreele 1989; Bhuyan et al., 2013). Magnesium Orhotitanate atau Mg_2TiO_4 banyak digunakan untuk berbagai aplikasi pada daerah gelombang mikro. Ye et al., (2013) melaporkan bahwa keramik berbasis Mg_2TiO_4 banyak dimanfaatkan sebagai resistor panas, bahan dielektrik untuk teknologi komunikasi gelombang mikro, kapasitor untuk kompensasi suhu. Sedangkan Petrova et al., (1997) dan Belous et al., (2006, 2007) melaporkan bahwa keramik Mg_2TiO_4 merupakan salah satu bahan dielektrik terkemuka untuk berbagai aplikasi gelombang mikro dengan konstanta dielektrik (ϵ_r) 13–14, faktor kualitas tinggi ($Q \times f$) ~ 150.000 GHz pada frekuensi 10 GHz, dan koefisien frekuensi resonansi (τ_f) -50 ppm/°C.

Perolehan-perolehan hasil di atas telah mendorong beberapa peneliti untuk mempelajari lebih lanjut tentang fabrikasi serbuk keramik Mg_2TiO_4 . *Solid-state reaction* merupakan salah satu metode fabrikasi serbuk keramik yang umum digunakan untuk mensintesis serbuk Mg_2TiO_4 atau disingkat MTO. Petrova et al., (1997) dan Belous et al., (2006) berhasil mensintesis serbuk MTO menggunakan metode *solid-state reaction*, namun dibutuhkan temperatur sinter tinggi (di atas 1300 °C). Selain itu masih ditemukan fasa sekunder (MgTiO_3) yang sulit dihindari. Beberapa peneliti juga melaporkan hasil sintesis serbuk MTO dengan berbagai metode, diantaranya metode *high energy ball milling* (Cheng et

al., 2015), dimana fasa Mg_2TiO_4 berhasil diperoleh pada temperatur kalsinasi 1000 °C. Temperatur ini jauh lebih rendah dibandingkan menggunakan metode *solid-state reaction* (Petrova et al., 1997). Silva et al., (2005) dengan metode *polymeric precursor* pada temperatur kalsinasi 1200 °C memperoleh fasa Mg_2TiO_4 sebagai fasa utama, dan MgTiO_3 sebagai fasa sekunder. Bhuyan et al., (2013) telah melakukan sintesis serbuk MTO dengan metode *mechanical*. Serbuk MTO disinter pada temperatur 1300, 1325, 1400 °C dan memperoleh fasa tunggal tanpa impuritas. Dari metode-metode tersebut ternyata untuk memperoleh fasa Mg_2TiO_4 dibutuhkan temperatur kalsinasi dan sinter yang tinggi.

Metode pencampuran larutan (*liquid mixing method*) telah diperkenalkan sebagai salah satu metode alternatif yang digunakan beberapa peneliti untuk fabrikasi serbuk prekursor pada sistem yang berbeda, yaitu: (Zhang et al., 2010) pada sistem $\text{LiNi}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Co}_{2/3}\text{O}_2$, (Xu et al., 2002) pada sistem $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$, (Ermawati et al., 2015) pada sistem $\text{Mg}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{TiO}_3$ dan (Ermawati et al., 2016) pada sistem $\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x\text{TiO}_3$, $x = 0-0.5$. Namun metode pencampuran larutan ini belum pernah dicoba untuk sintesis serbuk MTO amorf.

METODE

A. Material

Bahan awal yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk logam Mg dan Ti (*Merck*) dan HCl 37% 12 M.

B. Preparasi Sampel

Dalam penelitian ini, serbuk MTO disintesis menggunakan metode pencampuran larutan (*liquid mixing method*). Preparasi sampel dilakukan dengan cara

melarutkan masing-masing serbuk Mg dan Ti kedalam larutan HCl membentuk larutan $MgCl_2$ dan $TiCl_4$. Kedua larutan yang terbentuk kemudian dicampur menjadi satu, diaduk secara konstan selama 2 jam sampai homogen, kemudian dikeringkan diatas hotplate stirer pada temperatur 100-110 °C sampai kering berwarna putih keungguhan (mengerak), selanjutnya dilakukan penggerusan untuk mendapatkan serbuk MTO.

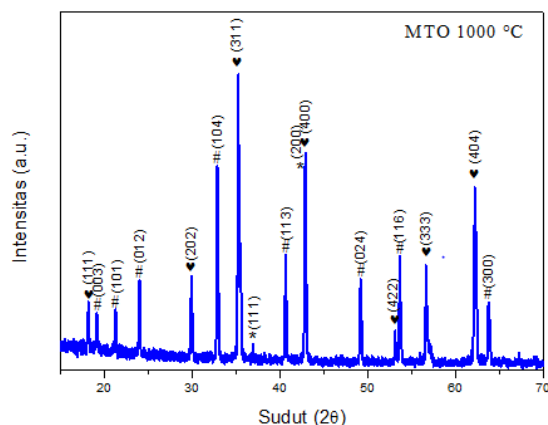
C. Karakterisasi Sampel

Serbuk hasil sintesis kemudian dikalsinasi pada temperatur 1000 °C. Serbuk hasil kalsinasi kemudian dikarakterisasi XRD untuk mengetahui fasa-fasa apa saja yang terdapat dalam sampel menggunakan alat XRD *Bragg-Brentano Philips X'pert Diffractometer* dengan radiasi Cu-K α dengan rentang sudut 15-70° dengan langkah 0,02°/menit dan posisi detektor zero 0,023 serta pengukuran dilakukan pada temperatur ruang. Uji FTIR dilakukan untuk mengetahui ikatan-ikatan kimia di dalam sampel uji menggunakan alat *Thermo-Scientific FT-IR spectrometer* dengan rentang bilangan gelombang=400-4000 cm^{-1} . Sedangkan uji PSA dilakukan dengan Zetasizer Nano Series Software Version 7.01, Malvern Instrument® untuk mengetahui distribusi ukuran partikel pada sampel.

HASIL DAN PEMBAHASAN

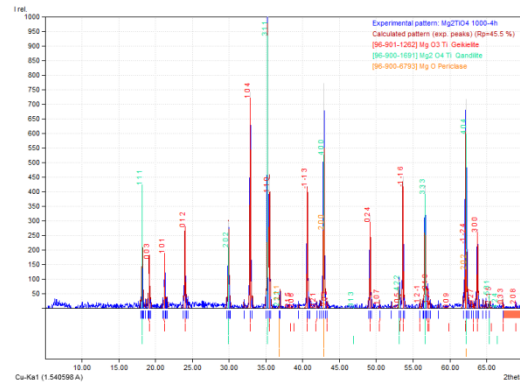
A. Identifikasi Fasa Menggunakan Program Match!

Analisis kualitatif atau identifikasi fasa dilakukan menggunakan program *Match!* Gambar 1 menunjukkan pola XRD serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C. Proses identifikasi fasa dilakukan dengan cara mencocokkan puncak-puncak difraksi pada setiap posisi 2 θ antara puncak terukur dengan puncak-puncak difraksi yang sesuai yang ada pada *database PDF (Powder Diffraction File) Match!*



Gambar 1. Pola XRD serbuk MTO pada temperatur kalsinasi 1000 °C selama 4 jam.

Gambar 1 menunjukkan pola XRD dari sampel MTO 1000 dengan simbol dan *hkl*. Pada gambar tersebut, puncak-puncak difraksi dengan simbol ♥ menyatakan puncak-puncak difraksi milik fasa Mg_2TiO_4 , sedangkan simbol # menyatakan puncak-puncak difraksi milik fasa $MgTiO_3$. dan simbol * menyatakan puncak-puncak difraksi milik fasa MgO .

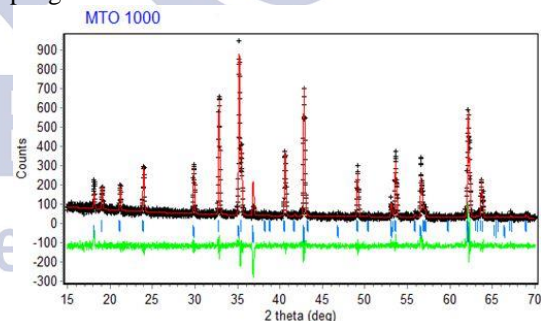


Gambar 2. Hasil identifikasi fasa untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam.

Gambar 2 menunjukkan hasil identifikasi fasa untuk pola XRD serbuk MTO. Seperti yang terlihat pada Gambar 2, fasa-fasa yang teridentifikasi untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C adalah $MgTiO_3$ (No. PDF 06-0494) sebagai fasa utama, Mg_2TiO_4 (No. PDF 25-1157) dan MgO (No. PDF 45-0946), keduanya sebagai fasa sekunder. Dengan munculnya fasa Mg_2TiO_4 , maka ini membuktikan bahwa metode pencampuran larutan dapat menghasilkan fasa Mg_2TiO_4 . Munculnya fasa MgO tersebut mungkin disebabkan karena ion Mg^{2+} belum sempurna membentuk $MgTiO_3$.

B. Analisis Struktur dan Komposisi Fasa

Analisis komposisi fasa (analisis kuantitatif) terhadap pola XRD untuk sampel uji pada penelitian ini dilakukan dengan metode *Rietveld* menggunakan program *Rietica*. Analisis kuantitatif bertujuan untuk mengetahui data komposisi fasa dari semua fasa yang teridentifikasi berdasarkan program *Match!* Data-data tersebut meliputi parameter kisi, % molar, volume sel satuan, dan densitas. Gambar 3 memberikan hasil penghalusan *Rietveld* untuk serbuk MTO 1000.



Gambar 3. Hasil penghalusan *Rietveld* dengan program *Rietica* untuk sampel MTO pada temperatur kalsinasi 1000 °C (FoM: $GoF=2,39$; $R_p=12,69$; $R_{wp}=18,87$; dan $R_{exp}=12,21$).

Seperti yang terlihat pada Gambar 3, simbol “+” pada gambar menunjukkan pola difraksi terukur (eksperimen), garis merah menunjukkan pola difraksi terhitung (model), garis hijau menunjukkan selisih intensitas antara pola difraksi model dengan pola difraksi eksperimen. Sedangkan garis-garis tegak kecil berwarna biru menunjukkan posisi puncak-puncak *Bragg* untuk semua fasa yang teridentifikasi berdasarkan program *Match!*

Rekapitulasi hasil penghalusan *Rietveld* untuk serbuk MTO 1000 ditunjukkan pada Tabel 1.

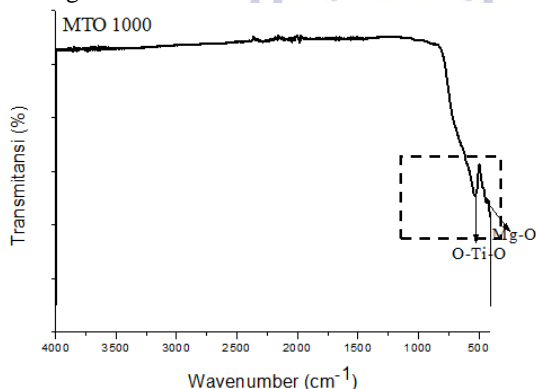
Tabel 1. Data komposisi fasa pada serbuk MTO 1000.

Parameter		Fasa Yang Teridentifikasi Pada Sampel		
		$MgTiO_3$	MgO	Mg_2TiO_4
Parameter Kisi (Å)	a=b	5.057	-	-
	c	13.906	-	-
	a=b=c	-	4.218	8.443
Volume sel satuan (Å ³)		307.953 ± 0.035	75.019 ± 0.007	601.840 ± 0.063
%molar		39.93 ± 0.69	54.32 ± 1.50	5.75 ± 0.12
Densitas (g.cm ⁻³)		3.887	3.567	6.192

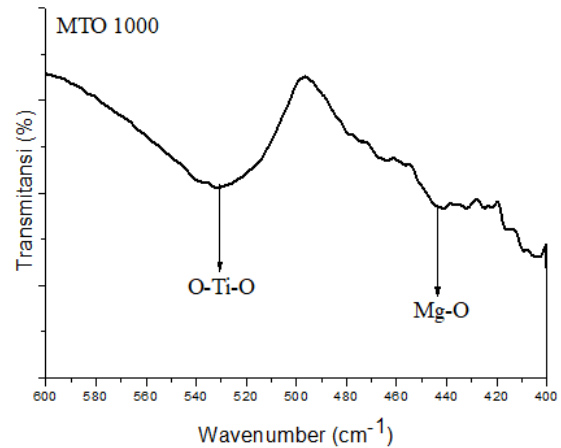
Seperti yang terlihat pada Tabel 1 dapat diperoleh informasi bahwa serbuk MTO 1000 mempunyai struktur atau bangunan yang terbuat dari fasa $MgTiO_3$, MgO, dan Mg_2TiO_4 . Adapun persentase molar untuk masing-masing fasa pembangun serbuk tersebut adalah sebesar $(39,93 \pm 0,69)\%$ untuk fasa $MgTiO_3$, fasa MgO sebesar $(54,32 \pm 1,50)\%$ sedangkan fasa Mg_2TiO_4 terbentuk sangat minor, yaitu $(5,75 \pm 0,12)\%$. Adanya fasa MgO yang masih teridentifikasi mengindikasikan bahwa MgO masih belum berubah membentuk $MgTiO_3$. Sedikitnya keberadaan fasa Mg_2TiO_4 juga mengindikasikan bahwa pada temperatur 1000 °C fasa Mg_2TiO_4 baru mulai terbentuk. Literatur (Ermawati et al., 2016) melaporkan bahwa fasa Mg_2TiO_4 baru terbentuk pada temperatur di atas 1100 °C.

C. Analisis Ikatan Kimia Uji FTIR

Karakterisasi FTIR bertujuan untuk mengetahui gugus ikatan kimia pada sampel uji. Gambar 4 menunjukkan hasil uji FTIR untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam pada rentang bilangan gelombang 4000-400 cm⁻¹. Perbesaran pada bilangan gelombang 600-400 cm⁻¹ diberikan pada Gambar 5. Terlihat pada gambar, FTIR merekam ada dua puncak adsorpsi, yakni pada bilangan gelombang 531 dan 446 cm⁻¹ terdapat pita vibrasi O-Ti-O dan Mg-O. Dengan adanya kedua vibrasi O-Ti-O dan Mg-O menunjukkan bahwa fasa $MgTiO_3$ dan Mg_2TiO_4 telah terbentuk sebab kedua fasa tersebut terbentuk akibat adanya vibrasi O-Ti-O dan Mg-O.



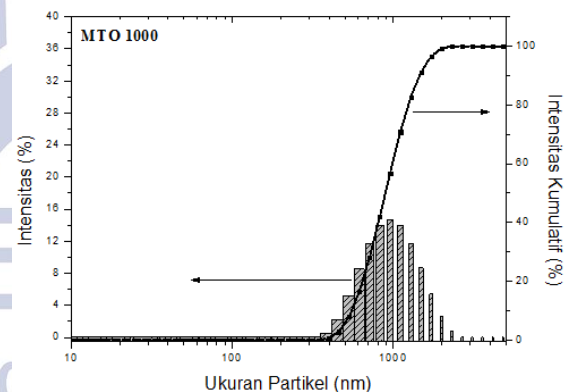
Gambar 4. Hasil uji FTIR untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam pada rentang bilangan gelombang 4000 - 400 cm⁻¹.



Gambar 5. Perbesaran spektrum FTIR pada Gambar 4 antara bilangan gelombang 600 - 400 cm⁻¹.

D. Analisis Distribusi Ukuran Partikel

Karakterisasi PSA bertujuan untuk mengetahui distribusi ukuran partikel pada sampel. Gambar 6 menunjukkan distribusi ukuran partikel pada serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam menggunakan PSA, Zetasizer Nano Series Software Version 7.01, Malvern Instrument. Hasil uji PSA berupa kurva dengan puncak tunggal dan dengan rentang ukuran partikel dari (458-1990) nm untuk serbuk MTO 1000 °C. Ukuran rata-rata partikel adalah sebesar 847 nm dengan deviasi sekitar 3% (Tabel 2). Berdasarkan fakta bahwa kurva distribusi berupa kurva dengan puncak tunggal dan nilai deviasi atau penyimpangan ukuran rata-rata kecil, yaitu <5%, maka dapat disimpulkan bahwa distribusi ukuran partikel yang ada pada serbuk MTO 1000 tersebut terdistribusi secara homogen.



Gambar 6. Distribusi ukuran partikel pada serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam.

Tabel 2. Distribusi ukuran partikel, Ukuran partikel rata-rata dan Deviasinya pada serbuk MTO 1000 °C.

Sampel	Distribusi Ukuran Partikel (nm)	Ukuran Partikel Rata-rata (nm)	Deviasi (%)
MTO	458-1990	847	3

PENUTUP

Simpulan

Dari penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa sintesis serbuk Mg_2TiO_4 (MTO)

dengan metode pencampuran larutan dapat menghasilkan fasa Mg_2TiO_4 . Serbuk MTO 1000 °C memiliki struktur atau bangunan yang terbuat dari fasa MgTiO_3 , Mg_2TiO_4 , dan MgO . Fasa Mg_2TiO_4 terbentuk sebesar $(5,75 \pm 0,12)\%$. Ukuran partikel rata-rata pada serbuk MTO 1000 sebesar 847 nm dengan penyimpangan sekitar 3%, dapat disimpulkan bahwa distribusi ukuran partikel yang ada pada serbuk MTO 1000 terdistribusi secara homogen.

Saran

Untuk mendapatkan hasil yang terbaik, sebaiknya dilakukan uji TGA/DTA pada serbuk hasil sintesis untuk menentukan temperatur pembentukan fasa Mg_2TiO_4 .

DAFTAR PUSTAKA

- Belous, A.G. 2001. "Physicochemical Aspects of the Development of MW Dielectrics and Their Use." *Journal of the European Ceramic Society* 21 (15): 2717–22. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(01\)00351-X](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(01)00351-X).
- Belous, Anatolii, Oleg Ovchar, Dmitrii Durilin, Marjeta Macek Krzmanc, Matjaz Valant, and Danilo Suvorov. 2006. "High-Q Microwave Dielectric Materials Based on the Spinel Mg_2TiO_4 ." *Journal of the American Ceramic Society* 89 (11): 3441–45. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2006.01271.x>.
- Belous, Anatolii, Oleg Ovchar, Dmitrii Durylin, Matjaz Valant, Marjeta Macek-Krzmanc, and Danilo Suvorov. 2007. "Microwave Composite Dielectrics Based on Magnesium Titanates." *Journal of the European Ceramic Society* 27 (8–9): 2963–66. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2006.11.022>.
- Bhuyan, Ranjan K., Thatikonda S. Kumar, Dobbidi Pamu, and Ajit R. James. 2013. "Structural and Microwave Dielectric Properties of Mg_2TiO_4 Ceramics Synthesized by Mechanical Method." *International Journal of Applied Ceramic Technology* 10 (September): E18–24. <https://doi.org/10.1111/j.1744-7402.2012.02823.x>.
- Cheng, Lin, Peng Liu, Shi-Xian Qu, Lei Cheng, and HuaiWu Zhang. 2015. "Microwave Dielectric Properties of Mg_2TiO_4 Ceramics Synthesized via High Energy Ball Milling Method." *Journal of Alloys and Compounds* 623 (February): 238–42. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2014.10.149>.
- Ermawati, F.U., S. Suasmoro, and Suminar Pratapa. 2015. "A Simple Dissolved Metals Mixing Route to Prepare Nanostructured $\text{Mg}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{TiO}_3$ Solid Solution." *Advanced Materials Research* 1112 (July): 47–52. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.1112.47>.
- Ermawati, F.U., Suminar Pratapa, S. Suasmoro, Thomas Hübert, and Ulrich Banach. 2016. "Preparation and Structural Study of $\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x\text{TiO}_3$ Ceramics and Their Dielectric Properties from 1 Hz to 7.7 GHz." *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 27 (7): 6637–45. <https://doi.org/10.1007/s10854-016-4610-6>.
- Petrova, M. A., G. A. Mikirticheva, A. S. Novikova, and V. F. Popova. 1997. "Spinel Solid Solutions in the Systems MgAl_2O_4 – ZnAl_2O_4 and MgAl_2O_4 – Mg_2TiO_4 ." *Journal of Materials Research* 12 (10): 2584–88. <https://doi.org/10.1557/JMR.1997.0343>.
- Silva, M. R. S., S. C. Souza, I. M. G. Santos, M. R. Cassia-Santos, L. E. B. Soledade, A. G. Souza, S. J. G. Lima, and E. Longo. 2005. "Stability Studied on Undoped and Doped Mg_2TiO_4 , Obtained by the Polymeric Precursor Method." *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry* 79: 421–424.
- Wechsler, Barry A., and Robert B Von Dreele. 1989. "Structure Refinement Of Mg_2TiO_4 , MgTiO_3 and MgTi_2O_5 by Time-of-Flight Neutron Powder Diffraction," 542–549.
- Xu, Lihua, Fang Lian, Juan Yang, and J.M.F. Ferreira. 2002. "A Novel Wet-Chemical Process to Synthesize $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ Nanopowders." *Ceramics International* 28 (5): 549–52. [https://doi.org/10.1016/S0272-8842\(02\)00008-1](https://doi.org/10.1016/S0272-8842(02)00008-1).
- Zhang, Mingming, Lingxia Li, Wangsuo Xia, and Qingwei Liao. 2012. "Structure and Properties Analysis for MgTiO_3 and $(\text{Mg}_{0.97}\text{M}_{0.03})\text{TiO}_3$ (M=Ni, Zn, Co and Mn) Microwave Dielectric Materials." *Journal of Alloys and Compounds* 537 (October): 76–79. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.05.026>.